

(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局(43) 国際公開日
2003 年 7 月 17 日 (17.07.2003)

PCT

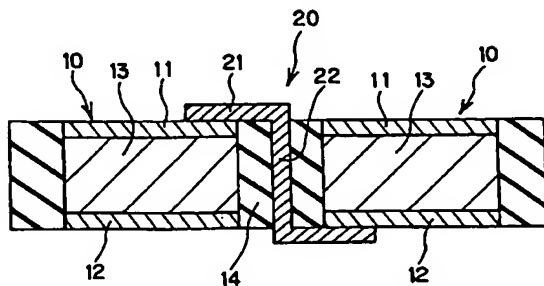
(10) 国際公開番号
WO 03/058738 A1

- (51) 国際特許分類: H01M 8/02, 8/10 (72) 発明者; および
(21) 国際出願番号: PCT/JP02/13588 (75) 発明者/出願人 (米国についてののみ): 前田 高德 (MAEDA, Takanori) [JP/JP]; 〒162-0062 東京都 新宿区 市谷加賀町一丁目 1 番 1 号 大日本印刷株式会社内 Tokyo (JP). 八木 裕 (YAGI, Hiroshi) [JP/JP]; 〒162-0062 東京都 新宿区 市谷加賀町一丁目 1 番 1 号 大日本印刷株式会社内 Tokyo (JP).
(22) 国際出願日: 2002 年 12 月 26 日 (26.12.2002)
(25) 国際出願の言語: 日本語
(26) 国際公開の言語: 日本語
(30) 優先権データ:
特願 2001-399862 2001 年 12 月 28 日 (28.12.2001) JP
特願 2001-399963 2001 年 12 月 28 日 (28.12.2001) JP
(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 大日本印刷株式会社 (DAI NIPPON INSATSU KABUSHIKI KAISHA) [JP/JP]; 〒162-0062 東京都 新宿区 市谷加賀町一丁目 1 番 1 号 Tokyo (JP).
(74) 代理人: 米田 潤三, 外 (YONEDA, Junzo et al.); 〒101-0043 東京都 千代田区 神田富山町 2 8 番地 2 松井ビル 4 階 Tokyo (JP).
(81) 指定国 (国内): CA, CN, KR, US.
(84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (DE, FI).
添付公開書類:
— 国際調査報告書

[続葉有]

(54) Title: POLYELECTROLYTE TYPE FUEL CELL AND SEPARATOR FOR POLYELECTROLYTE TYPE FUEL CELL

(54) 発明の名称: 高分子電解質型燃料電池および高分子電解質型燃料電池用のセパレータ



(57) Abstract: A polyelectrolyte type fuel cell comprising a plurality of series-connected unit cells formed by arranging the unit cells in the same direction and in a planar form, with specified adjacent unit cells electrically connected serially to each other, wherein at least one of a through-hole connection unit, a fill via connection unit and a bump connection unit is provided to an insulation unit that is positioned between specified adjacent unit cells, electrically insulated from each unit cell and almost as thick as a unit cell, thereby providing a plane-type polyelectrolyte type fuel cell.

(57) 要約:

各単位セルを同じ向きにして平面状に複数個配設し、所定の隣接する単位セル間を電氣的に直列に接続して、前記複数の単位セルを直列に接続した高分子電解質型燃料電池において、所定の隣接する単位セル間の電氣的な接続をおこなうために、所定の隣接する単位セル間に位置して各単位セルと電氣的に絶縁された略単位セルの厚さの絶縁部に、スルホール接続部、充填ビア接続部、バンプ接続部の少なくとも1つを設けることにより、平面型の高分子電解質型燃料電池が可能となる。



2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

- 1 -

明 細 書

高分子電解質型燃料電池および
高分子電解質型燃料電池用のセパレータ

5

技術分野

本発明は、各単位セルを同じ向きにして平面状に複数個配設し、所定の隣接する単位セル間を電氣的に接続して、上記の複数の単位セルを直列に接続した高分子電解質型燃料電池に関する。さらに、本発明は、燃料としてメタノール水溶液をダイレクトに用いるダイレクトメタノール型、且つ、平面型の高分子電解質型燃料電池用のセパレータに関する。

10

背景技術

最近、地球環境保護の観点や、水素を直接燃料として用いると有利であり、エネルギー変換効率が高いという点等から、燃料電池に対する期待が急激に高まってきている。

15

これまでは、宇宙開発や海洋開発に利用されてきたが、最近では、自動車のエンジンに代わる動力源や、家庭用発電装置へと展開され、広く使われる可能性が大きくなった。

20

燃料電池は、簡単には、外部より燃料（還元剤）と酸素または空気（酸化剤）を連続的に供給し、電気化学的に反応させて電気エネルギーを取り出す装置である。燃料電池は、その作動温度、使用燃料の種類、用途等で分類することもあるが、最近では、主に使用される電解質の種類によって、大きく、固体酸化物型燃料電池（S O F C）、熔融炭酸塩型燃料電池（M C F C）、リン酸型燃料電池（P A F C）、高分子電解質型燃料電池（P E F C）、アルカリ水溶液型燃料電池（A F C）の5種類に分類されるのが一般的である。

25

これらの燃料電池は、メタン等から生成された水素ガスを燃料とするものであるが、最近では、燃料としてメタノール水溶液をダイレクトに

用いるダイレクトメタノール型燃料電池（DMFC）も知られている。

このような燃料電池の中で、固体高分子膜を２種類の電極で挟み込み、更にこれらの部材をセパレータで挟んだ構成の固体高分子型燃料電池（以下、高分子電解質型燃料電池、あるいはPEFC: Polymer Electrolyte Fuel Cellとも言う）が注目されている。

このPEFCは、固体高分子膜の両側に空気極（酸素極）、燃料極（水素極）等の電極を配置して単位セルを構成し、この単位セルの両側を燃料電池用セパレータで挟んだ構成となっている。

- 10 例えば、PEFCの構成として、厚さ $20\mu\text{m}\sim 70\mu\text{m}$ の高分子電解質の両側に厚さ $10\mu\text{m}\sim 20\mu\text{m}$ の触媒層からなる燃料極と空気極を形成し一体化し、触媒層外側に集電材として多孔質の支持層（カーボンペーパー、気孔率約80%）を付し、さらに水素や酸素等の反応ガスの供給路をかねているセパレータ（仕切り板）によって挟持された構成
15 が挙げられる。

上記のPEFCでは、燃料（水素）と酸化剤（空気）が直接反応しないように、これらを隔離し、かつ燃料極で生成する水素イオン（プロトン）を空気極側まで運ぶ必要がある。

- 20 常温（ 100°C 以下）で作動し、固体の高分子膜中をプロトンが動く燃料電池では、イオン交換基としてスルホン酸基を持つパーフルオロカーボンスルホン酸構造を持つ薄膜（厚さ $50\mu\text{m}$ 程度）を固体高分子膜として使用でき、コンパクトな電池をつくることができる。

- 25 このようなPEFCでは、その出力性能は、 $1\sim 3\text{A}/\text{cm}^2$ 、 $0.6\sim 2.1\text{V}/\text{単セル当たり}$ 、 $2.1\text{W}/\text{cm}^2$ の高出力密度が得られる。

このPEFCにおいては、固体高分子膜の両側に、それぞれ、電極を配置した単位セルを複数個積層することにより、その起電力を目的に合せて大きくした、スタック構造のもの（PEFCスタックとも言う）が一般的である。しかし、例えば、携帯端末用などの燃料電池のように、

起電力をそれほど必要とせず、平面型で、できるだけ薄いことが要求される場合もある。

また、P E F Cスタックでは、セパレータとして、一般に、隣接する一方の単位セルに燃料ガスを供給する為の燃料ガス供給用溝が一方の面に形成され、隣接する他方の単位セルに酸化剤ガスを供給する為の酸化剤ガス供給用溝が他方の面に形成されている構造のセパレータが使用されている。これにより、セパレータ面に沿って、燃料ガス、酸化剤ガスが供給される。

P E F Cのセパレータとしては、グラファイト板を削り出して溝加工を施したもの、樹脂にカーボンを練り込んだカーボンコンパウンドのモールド性セパレータ、エッチング等で溝加工を施した金属製セパレータ、金属材料の表面部を耐食性の樹脂で覆ったもの等が知られている。これらのセパレータは、いずれも必要に応じて、燃料ガス供給用溝および/または酸化剤ガス供給用溝が形成されている。

しかし、燃料としてメタノール水溶液をダイレクトに用いるダイレクトメタノール型燃料電池（D M F C）においては、燃料ガスを供給するための燃料ガス供給用溝を備えた上述の従来のセパレータによる燃料の供給が、場所により不均一となり、問題となっていた。

特に、ダイレクトメタノール型で、平面状に単位セルを複数配列させ、これらを電氣的に直列に接続する平面型の場合に、問題となっていた。

上記のように、近年、燃料電池が広く使われる可能性が大きくなり、P E F Cにおいては、一般的なスタック構造の他に、起電力をそれほど必要とせず、平面型であって、できるだけ薄い形態のものも要求されるようになってきた。さらに、ダイレクトメタノール型の平面型のP E F Cでは、場所による燃料供給の不均一性の問題を十分に解消できず、その対応が求められていた。

発明の開示

そこで、本発明の目的は、平面状に設けられた単位セルを、電氣的に直列

に接続した構造を持つ燃料電池を提供しようとするものである。

また、本発明は、特に、ダイレクトメタノール型で、且つ、平面型の P E F C で、場所による燃料供給の不均一性の問題を解消できるものを提供しようとするものである。

- 5 このような目的を達成するために、本発明の高分子電解質型燃料電池は、各単位セルを同じ向きにして平面状に複数個配設し、所定の隣接する単位セル間を電気的に直列に接続して、前記複数の単位セルを直列に接続した高分子電解質型燃料電池において、前記所定の隣接する単位セル間の電気的な接続をおこなうために、前記所定の隣接する単位セル間に位置して各単位セルと電気的に絶縁された
- 10 略単位セルの厚さの絶縁部に、スルホール接続部、充填ビア接続部、バンプ接続部の少なくとも 1 つを設けているような構成とした。

- また、本発明の高分子電解質型燃料電池は、1 つの板状の高分子電解質膜の一部を各単位セルを構成する電解質膜として複数個の単位セルを同じ向きにして平面状に配設し、所定の隣接する単位セル間を電気的に直列に接続して、前記複数の
- 15 単位セルを直列に接続した高分子電解質型燃料電池において、前記所定の隣接する単位セル間の電気的な接続をおこなうために、前記所定の隣接する単位セル間の高分子電解質膜に、スルホール接続部、充填ビア接続部、バンプ接続部の少なくとも 1 つを設けているような構成とした。

- このような本発明によれば、平面状に設けられた複数個の単位セルを、
- 20 電気的に直列に接続した構造を持つ燃料電池の提供を可能とするものである。すなわち、所定の隣接する単位セル間に、各単位セルと電気的に絶縁された略単位セルの厚さの絶縁部が設けられていることにより、あるいは、1 つの板状の高分子電解質膜の一部を各単位セルを構成する電解質膜とし、単位セル間には高分子電解質膜を配して、各単位セルを同
- 25 じ向きにして平面状に複数個配設していることにより、従来広く用いられているスルホール接続、充填ビア接続、バンプ接続の技術を、単位セル間の電気的に直列な接続に適用できる。

また、本発明のセパレータは、燃料としてメタノール水溶液をダイレクトに用いるダイレクトメタノール型、且つ、平面型の高分子電解質型燃料電池用の燃料

供給側のセパレータにおいて、燃料を燃料電池の電解質側に供給するための貫通孔を、その面に略直交するようにして複数配列して設けた板状の部材を有し、該板状の部材の燃料を供給する面には燃料供給用溝と、貫通孔間を結ぶ溝とが形成されているような構成とした。

- 5 尚、平面型のPEFCにおいては、全体が筐体に包まれるようになるのが一般的であり、上記のセパレータでは、当接する板状の部材と筐体との間で、板状の部材の貫通孔部、燃料供給用溝、貫通孔間を結ぶ溝が、それぞれ、燃料供給用流路を構成することとなる。

- 10 また、本発明のセパレータは、燃料としてメタノール水溶液をダイレクトに用いるダイレクトメタノール型、且つ、平面型の高分子電解質型燃料電池用の燃料供給側のセパレータにおいて、燃料を燃料電池の電解質側に供給するための貫通孔を、その面に略直交するようにして複数配列して設けた板状の部材と、該板状の部材の一方の面を覆う蓋部とを有し、前記板状の部材の前記蓋部と当接する面には燃料供給用溝と、貫通孔間を結ぶ溝とが形成されており、当接された前記板
- 15 状の部材と蓋部との間で、前記貫通孔、前記燃料供給用溝、貫通孔間を結ぶ前記溝が、それぞれ、燃料供給用流路をなすような構成とした。

- 20 また、本発明のセパレータは、燃料としてメタノール水溶液をダイレクトに用いるダイレクトメタノール型、且つ、平面型の高分子電解質型燃料電池用の燃料供給側のセパレータにおいて、燃料を燃料電池の電解質側に供給するための貫通孔を、その面に略直交するようにして複数配列して設けた板状の部材と、該板状の部材の一方の面を覆う蓋部とからなり、該蓋部の前記板状の部材と当接する面には、燃料供給用溝と、貫通孔間を結ぶ溝とが設けられており、当接された前記板状の部材と前記蓋部との間で、前記板状の部材の貫通孔部、前記蓋部の燃料供給用溝、貫通孔間を結ぶ溝が、それぞれ、燃料供給用流路をなすような構成とした。
- 25 た。

また、本発明のセパレータは、上記のセパレータにおいて、各貫通孔には、燃料供給用溝または貫通孔間を結ぶ溝が複数つながっているような構成とした。

また、本発明のセパレータは、上記のセパレータにおいて、板状の部材は、金属を基体とし、少なくとも燃料電池の電解質側となる前記基体の表面部には、耐

酸性、電気導電性の樹脂層等からなる保護層が配設されているような構成とした。

また、本発明のセパレータは、上記のセパレータにおいて、前記保護層は、樹脂にカーボン粒子、耐食性の金属等の導電材を混合した電着液を用いて、電着により膜を成膜し、その後、加熱硬化して形成されたもの、あるいは、電解重合により、導電性高分子からなる樹脂に導電性を高めるドーパントを含んだ状態の膜を成膜して形成されたものであるような構成とした。

また、本発明の高分子電解質型燃料電池は、燃料としてメタノール水溶液をダイレクトに用いるダイレクトメタノール型、且つ、平面型の高分子電解質型燃料電池において、燃料を燃料電池の電解質側に供給するための貫通孔を、その面に略直交するようにして複数配列して設けた板状の部材を有し、該板状の部材の燃料を供給する面には燃料供給用溝と、貫通孔間を結ぶ溝とが形成されている高分子電解質型燃料電池用のセパレータを用いて、該セパレータの貫通孔を介して、燃料を供給するものであるような構成とした。

また、本発明の高分子電解質型燃料電池は、燃料としてメタノール水溶液をダイレクトに用いるダイレクトメタノール型、且つ、平面型の高分子電解質型燃料電池において、燃料を燃料電池の電解質側に供給するための貫通孔を、その面に略直交するようにして複数配列して設けた板状の部材と、該板状の部材の一方の面を覆う蓋部とを有し、前記板状の部材の前記蓋部と当接する面には燃料供給用溝と、貫通孔間を結ぶ溝とが形成されており、当接された前記板状の部材と蓋部との間で、前記貫通孔、前記燃料供給用溝、貫通孔間を結ぶ前記溝が、それぞれ、燃料供給用流路を構成している高分子電解質型燃料電池用のセパレータを用いて、該セパレータの貫通孔を介して、燃料を供給するものであるような構成とした。

また、本発明の高分子電解質型燃料電池は、燃料としてメタノール水溶液をダイレクトに用いるダイレクトメタノール型、且つ、平面型の高分子電解質型燃料電池において、燃料を燃料電池の電解質側に供給するための貫通孔を、その面に略直交するようにして複数配列して設けた板状の部材と、該板状の部材の一方の面を覆う蓋部とからなり、該蓋部の前記板状の部材と当接する面には、燃料供給用溝と、貫通孔間を結ぶ溝とが設けられており、当接された前記板状の部材と前記蓋部との間で、前記板状の部材の貫通孔部、前記蓋部の燃料供給用溝、貫通孔

間を結ぶ溝が、それぞれ、燃料供給用流路を構成している高分子電解質型燃料電池用のセパレータを用いて、該セパレータの貫通孔を介して、燃料を供給するものであるような構成とした。

- 5 本発明のダイレクトメタノール型の平面型の高分子電解質型燃料電池用のセパレータは、このような構成にすることにより、特に、ダイレクトメタノール型の、平面型のPEFCで、場所による燃料供給の不均一性の問題を解消することができる。

即ち、貫通孔間を結ぶ溝を設けていることにより、燃料供給の場所による不均一性の問題を解消できるものとしている。

- 10 特に、各貫通孔に溝が複数（2個以上）つながっていることにより、場所による燃料供給の不均一性の問題解消を更に進めることができる。

また、板状の部材が、金属を基体とし、少なくとも、基体の燃料電池の電解質側となる表面部には、耐酸性、電気導電性の樹脂層等からなる保護層を配設することにより、実用に耐える構造としている。

- 15 本発明の高分子電解質型燃料電池は、上記のような構成にすることにより、特に、ダイレクトメタノール型の、平面型のPEFCにおいて、場所による燃料供給の不均一性の問題を解消することができる。

図面の簡単な説明

- 20 図1は本発明の高分子電解質型燃料電池の実施の形態の第1の例の断面図である。

図2は図1に示される高分子電解質型燃料電池の平面図である。

図3(a)～図3(d)は第1の例において充填タイプのスルホール接続部を表裏接続部とした場合の製造工程図である。

- 25 図4(a)～図4(d)は第1の例において充填ビア接続部を表裏接続部とした場合の製造工程図である。

図5(a)～図5(c)は第1の例においてパンプ接続部を表裏接続部とした場合の製造工程図である。

図6は本発明の高分子電解質型燃料電池の実施の形態の第2の例の断

面図である。

図 7 は図 6 に示される高分子電解質型燃料電池の平面図である。

図 8 は本発明の高分子電解質型燃料電池の実施の形態の第 3 の例の断面図である。

5 図 9 は図 8 に示される高分子電解質型燃料電池の平面図である。

図 10 は本発明のダイレクトメタノール型の平面型の高分子電解質型燃料電池用のセパレータの実施の形態の第 1 の例の断面図である。

図 11 は図 10 に示されるセパレータの貫通孔を示した図である。

10 図 12 は本発明のダイレクトメタノール型の平面型の高分子電解質型燃料電池用のセパレータの実施の形態の第 2 の例の断面図である。

図 13 は本発明のダイレクトメタノール型の平面型の高分子電解質型燃料電池用のセパレータの実施の形態の第 3 の例の断面図である。

図 14 は図 13 に示されるセパレータの貫通孔を配した板状の部材を示した図である。

15 図 15 は図 13 に示されるセパレータの蓋部を示した図である。

図 16 は本発明の高分子電解質型燃料電池の実施の形態の第 1 の例断面図である。

図 17 は図 16 に示される高分子電解質型燃料電池の平面図である。

20 図 18 (a) ~ 図 18 (d) は図 17 に示される高分子電解質型燃料電池の接続部の製造工程断面図である。

図 19 は本発明の高分子電解質型燃料電池の実施の形態の第 2 の例を示した断面図である。

図 20 は本発明の高分子電解質型燃料電池の実施の形態の第 3 の例を示した断面図である。

25

発明を実施するための最良の形態

次に、本発明の実施の形態について説明する。

本発明の高分子電解質型燃料電池の実施の形態例を、図 1 ~ 図 9 に基づいて説明する。

図 1 ～ 図 9 において、10 は単位セル、11 は燃料極側セパレータ（集電体、あるいはバイポーラプレートとも言う）、12 は空気極側セパレータ（集電体、あるいはバイポーラプレートとも言う）、13 は高分子電解質膜、14 は絶縁部、16 は貫通孔、20 は接続部、21 は接続配線、
5 22 は表裏接続部、26, 27 は配線、31 は銅箔、33 はめっき層、
35, 36 は導電ペースト、41, 42 は銅箔、45 はパンプ、46 は接触部、50 は単位セル、51 は燃料極側セパレータ（集電体、あるいはバイポーラプレートとも言う）、52 は空気極側セパレータ（集電体、あるいはバイポーラプレートとも言う）、53 は高分子電解質膜、54 は
10 絶縁部、60 は接続部、61 は接続配線、62 は表裏接続部、66, 67 は配線、70 は単位セル、71 は燃料極側セパレータ（集電体、あるいはバイポーラプレートとも言う）、72 は空気極側セパレータ（集電体、あるいはバイポーラプレートとも言う）、73 は高分子電解質膜、73A は板状の高分子電解質膜、80 は接続部、81 は接続配線、82 は表裏
15 接続部、86, 87 は配線である。

尚、図 3 ～ 図 5 は図 1 の接続部 20 付近の図である。

また、図 1 は図 2 の A1 - A2 における断面図であり、図 6 は図 7 の B1 - B2 における断面図であり、図 8 は図 9 の C1 - C2 における断面図である。

20 また、図 2 中の A3, A4、図 7 中の B3, B4、図 9 中の C3, C4 は出力端子部である。

はじめに、本発明の高分子電解質型燃料電池の実施の形態の第 1 の例を図 1、図 2 に基づいて説明する。

第 1 の例の高分子電解質型燃料電池は、図 1 および図 2 に示すように、
25 平面状に単位セル 10 を複数個配列し、これらを電氣的に直列に接続し、単位セルの個数分（図 2 では 4 個分）の電圧を取り出す高分子電解質型燃料電池である。また、各単位セル 10 のまわりには、これと略同じ厚さの絶縁部 14 を設け、全体を平面状にしている。すなわち、平板状の絶縁部 14 のくり抜き部に単位セル 10 を嵌め込んだ状態とすることに

より、単位セル 10 と絶縁部 14 とを平面状に設けているものである。

本例は、所定の隣接する単位セル間に位置して、各単位セル 10 と電氣的に絶縁された絶縁部 14 に、貫通してその表裏の接続を行うための表裏接続部 22 を設けている。そして、この表裏接続部 22 を、接続配線 21 を介して、隣接する一方の単位セルの燃料極側セパレータ（集電体、あるいはバイポーラプレートとも言う）11 および他方の単位セルの空気極側セパレータ（集電体、あるいはバイポーラプレートとも言う）12 に接続して、隣接する単位セル間を電氣的に直列に接続しているものである。

10 尚、ここでは、説明を分かり易くする為、図 2 で単位セルの個数を 4 個としているが、5 個以上でも良い。

絶縁部 14 は、隣接する単位セル間を、接続部 20（接続配線 21 および表裏接続部 22）で接続される以外は、互いに絶縁するものであり、このような絶縁部 14 は、処理性、耐久性の面で優れたものであれば特に限定はされない。絶縁部 14 用の材料としては、通常、基板材料が用いられ、例えば、ガラスエポキシ、ポリイミド樹脂等が使用される。また、絶縁部 14 は、絶縁物のみからなるものでも、導電性のものを一部含むような構造でも良い。

接続部 20 として、スルホール接続部、あるいは、充填ビア接続部、
20 バンプ接続部のいずれかが、絶縁部 14 中に設けられるが、これらは、従来の配線基板技術の応用として、形成できる。

単位セル 10 の燃料極側セパレータ 11、空気極側セパレータ 12 の材質としては、導電性、強度、耐食性の面で使用に耐え、且つ、接続配線 21 との接続性が良いものが好ましい。これらの材質としては、通常、
25 金属材が用いられ、例えば、ステンレス、冷間圧延鋼板、アルミニウム等が適用される。あるいは、セパレータ 12 として、これらの金属材を基材とし、高分子電解質膜側の面に耐酸性かつ電気導電性を有する樹脂膜を配設したものが適用される。

以下、本例の高分子電解質型燃料電池の製造方法の 1 例を、図 3 に基

づいて、その処理の流れを簡単に説明する。この例では、接続部 20 の表裏接続部 22 を、充填タイプのスルホール接続部とした場合とする。

まず、両面に銅箔 31 を有するガラスエポキシ基板（絶縁部 14）に、単位セルを嵌め込む孔部を形成し、その孔部に単位セル 10 を、同じ向きに嵌め込む。（図 3（a））

次いで、ドリルあるいはレーザにより、充填タイプのスルホール接続部を形成するための、貫通孔 16 を開ける。（図 3（b））

次いで、デスミア処理および触媒付与処理を行った後、貫通孔 16 の表面部を含む全面に無電解めっきを行ない、更に無電解めっき層上に電解めっきを行なう。これにより、貫通孔 16 がめっき層 33 で充填されて表裏接続部 22 が形成され、表裏が導通される。（図 3（c））

無電解めっきとしては、無電解ニッケルめっき、無電解銅めっき等を適宜行なう。無電解めっきは、触媒にて活性化処理を行った後、所定のめっき液にて行う。また、電解めっきとしては、通常、銅めっきが行われる。

次いで、表裏面全体にレジスト製版を行ない、レジストから露出しためっき層 33 をエッチングして接続配線 21 を形成し、レジストの除去、必要に応じ洗浄処理を行ない、本例の高分子電解質型燃料電池を得る。（図 3（d））

エッチング液は、めっき層 33 を、燃料極側セパレータ 11、空気極側セパレータ 12 とは別に選択的にエッチングできるものを使用する。このようなエッチング液としては、塩化第 2 鉄液等を用い、セパレータの材質と銅配線のエッチングレートを考慮し、エッチング条件を決定することができる。

尚、ここでは、貫通孔 16 を、めっき層 33 で充填したが、これに限定されるものではない。例えば、貫通孔 16 を大きくしておき、めっき後の状態が、貫通孔 16 の内壁面にめっき層 33 が形成されているものの、まだ表裏で貫通している状態であるような普通のスルホール接続部としても良い。

次いで、本例の高分子電解質型燃料電池の製造方法の 1 例を、図 4 に基づいて、その処理の流れを簡単に説明する。この例では、接続部 2 0 の表裏接続部 2 2 を、充填ビア接続部とした場合とする。

まず、ガラスエポキシ基板（絶縁部 1 4）に、単位セルをはめ込む孔部を形成し、その孔部に単位セル 1 0 を、同じ向きに嵌め込んでおき（図 4（a））、ドリルあるいはレーザーにより、充填ビア部を形成するための貫通孔 1 6 を絶縁部 1 4 に開ける。（図 4（b））

次いで、スクリーン印刷等を用いて導電性ペーストをガラスエポキシ基板の一方の面に均一な厚さに塗布し、ガラスエポキシ基板の裏側に吸引器具を配置し貫通孔 1 6 内を減圧することにより、導電性ペースト 3 5 を貫通孔 1 6 に充填させる。（図 4（c））

次いで、印刷法にて導電性ペースト 3 6 を印刷して、接続配線 2 1 を形成して、本例の高分子電解質型燃料電池を得る。（図 4（d））

導電性ペーストとしては、銀ペースト、銅ペースト、金ペースト、パラジウムペースト、パラジウム-銀ペースト等が挙げられる。

次いで、本例の高分子電解質型燃料電池の製造方法の 1 例を、図 5 に基づいて、その処理の流れを簡単に説明する。この例では、接続部 2 0 の表裏接続部 2 2 を、バンプ接続部とした場合とする。

まず、ガラスエポキシ基板等の絶縁基板（絶縁部 1 4）を用いて、単位セルをはめ込む孔部を形成しておき、その孔部に単位セル 1 0 を、同じ向きに嵌め込む。次いで、絶縁基板（絶縁部 1 4）の一方の面に銅箔 4 1 を、他方の面には、絶縁基板（絶縁部 1 4）側に導電性のバンプ 4 5 を形成した銅箔 4 2 を用意する。（図 5（a））そして、銅箔 4 1 と銅箔 4 2 を絶縁基板（絶縁部 1 4）に積層する（図 5（b））。この積層により、バンプ 4 5 は絶縁部 1 4 を貫通して銅箔 4 1 に接続した状態となる。

バンプ 4 5 は、導電性ペーストを複数回印刷してバンプ形成したもの、あるいは、ワイヤバンプ、またはワイヤバンプを更に導電性ペーストで覆ったもの等が適用できる。

尚、ポンプを作製する際、ポンプ部の高さを得るとともに、その先端を鋭く尖らせておく。

次いで、表裏面全体にレジスト製版を行ない、レジストから露出した銅箔 4 1, 4 2 をエッチングして接続配線 2 1 を形成する。次いで、レジストの除去、必要に応じ洗浄処理を行ない、本例の高分子電解質型燃料電池を得る。(図 5 (c))

図 3 ~ 図 5 に示す接続部 2 0 の形成方法は例示であり、これに限定はされない。

第 1 の例は、このように、所定の隣接する単位セル間に、各単位セルと電氣的に絶縁された略単位セルの厚さの絶縁部 1 4 が設けられていることにより、接続部 2 0 として、従来広く用いられているスルホール接続、充填ビア接続、ポンプ接続等を採用することができる。また、接続部 2 0 の形成は、各単位セルに影響のない電氣的に安定なものとなる。

次に、本発明の高分子電解質型燃料電池の実施の形態の第 2 の例を図 6、図 7 に基づいて説明する。

第 2 の例は、第 1 の例と同様、平面状に単位セル 5 0 を複数個配列し、これらを電氣的に直列に接続し、単位セルの個数分 (図 7 では 4 個分) の電圧を取り出す高分子電解質型燃料電池である。そして、接続部 6 0 を設ける単位セル 5 0 間の一部に、これと略同じ厚さの絶縁部 5 4 を設け、全体を平面状にしてある。すなわち、表裏接続部 6 2 を設ける隣接する単位セル間の、高分子電解質膜 5 3 の一部を、絶縁部 5 4 に置き代えてある構造となっている。

第 2 の例の場合、1つの平面板状の高分子電解質膜 5 3 の両側の、それぞれ、複数個 (図 7 では 4 個) の燃料極側セパレータ 5 1、空気極側セパレータ 5 2 が、離れた状態で配置されている。さらに、各単位セル 5 0 の燃料極側セパレータ 5 1、空気極側セパレータ 5 2 は同じ大きさで、同じ位置で相対しており、各単位セルは分離されている。

各単位セル 5 0 の向きは同じで、電氣的に直列に接続するためには、表裏接続部が必ず必要となる。

第2の例の場合も、所定の隣接する単位セル間に位置して、各単位セル50と電氣的に絶縁された絶縁部54に、第1の例の場合と同様、貫通してその表裏の接続をおこなうための表裏接続部62を設けている。そして、この表裏接続部62を、接続配線61を介して、隣接する一方5の単位セルの燃料極側セパレータ51および他方の単位セルの空気極側セパレータ52に接続して、隣接する単位セル間を電氣的に接続しているものである。

尚、ここでも、説明を分かり易くする為、図7で単位セルの個数を4個としているが、5個以上でも良い。

10 第2の例の場合も、各部（材質や構造等）は、第1の例の場合と同じものが適用できる。

また、第2の場合も、第1の例と同様にして、接続部60として、スルホール接続部、あるいは、充填ビア接続部、パンプ接続部のいずれかが、絶縁部54中に設けられる。

15 また、スルホール接続部、充填ビア接続部、あるいは、パンプ接続部等からなる表裏接続部62を含む接続部60の形成は、基本的には、第1の例の場合で説明したその工程と同様にして行うことができる。

第2の例の場合も、所定の隣接する単位セル間に、各単位セルと電氣的に絶縁された略単位セルの厚さの絶縁部54が設けられていることにより、接続部60として、第1の例の場合と同様、従来広く用いられているスルホール接続、充填ビア接続、パンプ接続等を採用することができる。さらに、接続部60の形成は、各単位セルに影響のない電氣的に安定なものとなる。

次に、本発明の高分子電解質型燃料電池の実施の形態の第3の例を図25 8、図9に基づいて説明する。

第3の例は、1つの単位セル70のサイズより大サイズの、1つの板状の高分子電解質膜73Aの一部を、各単位セル70の電解質膜73として各単位セル70を同じ向きにして平面状に複数個配設したものである。そして、所定の隣接する単位セル70間を電氣的に直列に接続して、

複数の単位セルすべてを直列に接続し、単位セル 70 の個数分（図 9 では 4 個分）の電圧を取り出す高分子電解質型燃料電池である。この高分子電解質型燃料電池では、所定の隣接する単位セル間の電氣的な接続をおこなうために、前記所定の隣接する単位セル間に位置する高分子電解質膜 73A に、表裏接続部 82 を設けている。

第 3 の例の場合も、表裏接続部 82 を、接続配線 81 を介して、隣接する一方の単位セル 70 の燃料極側セパレータ 71 および他方の単位セル 70 の空気極側セパレータ 72 に接続して、隣接する単位セル間を電氣的に接続している。

10 尚、ここでも、説明を分かり易くする為、図 9 で単位セルの個数を 4 個としているが、5 個以上でも良い。

第 3 の例の場合も、第 1 の例、第 2 の例と同様にして、接続部 80 として、スルホール接続部、あるいは、充填ビア接続部、パンプ接続部等を、接続する所定の隣接する単位セル間の高分子電解質膜 73A に設ける。

15 また、スルホール接続部、充填ビア接続部、あるいは、パンプ接続部等からなる表裏接続部 82 を含む接続部 80 の形成は、基本的には、第 1 の例の場合で説明したその工程と同様にして行うことができる。

第 3 の例の場合も、1 つの板状の高分子電解質膜の一部を各単位セルを構成する電解質膜とし、単位セル間には高分子電解質膜を配して、各単位セルを同じ向きにして平面状に複数個配設しているのので、接続部 80 として、従来広く用いられているスルホール接続、充填ビア接続、パンプ接続等の形態を採ることができる。

25 上記、第 1 の例～第 3 の例においては、単位セルを平面状に複数個配列しただけのものであるが、このような構造のものを、更に、複数重ねた（スタック状にした）状態の形態も挙げられる。

尚、この場合、出力端子部（図 2 の A3、A4、図 7 の B3、B4、図 9 の C3、C4 に相当）の積層方向の接続は、従来のスタック構造と同様にしてとることができる。

次に、本発明のダイレクトメタノール型の平面型の高分子電解質型燃料電池用のセパレータ、および、高分子電解質型燃料電池の実施の形態例を、図10～図20に基づいて説明する。

図10～図20において、100A、100B、100Cはセパレータ、110、110aは板状の部材、111は貫通孔部、112は溝、112aは燃料供給用溝、120、120aは蓋部、122は溝、130は単位セル、132は空気極側セパレータ、133は高分子電解質膜、134は絶縁部、136は貫通孔、140は接続部、141は接続配線、142は表裏接続部、146、147は配線、151は銅箔、153はめっき層、160は単位セル、162は空気極側セパレータ、163は高分子電解質膜、164は絶縁部、170は接続部、171は接続配線、172は表裏接続部、180は単位セル、182は空気極側セパレータ、183は高分子電解質膜、183Aは板状の高分子電解質膜、190は接続部、191は接続配線、192は表裏接続部である。

図11は図10の一点鎖線からA1、A2側に見た図で、図16は図17のB1-B2における断面図である。図17中、B3、B4は出力端子部である。

尚、図18は図16の接続部140付近の図である。

はじめに、本発明のダイレクトメタノール型の平面型の高分子電解質型燃料電池用のセパレータの実施の形態の第1の例を図10に基づいて説明する。

第1の例は、燃料としてメタノール水溶液をダイレクトに用いるダイレクトメタノール型、且つ、平面型の高分子電解質型燃料電池用の、燃料供給側のセパレータである。図10に示すように、セパレータ100Aは、燃料を燃料電池の電解質側に供給するための貫通孔111を、その表面に略直交するようにして板状の部材110に複数配列して設け、且つ、燃料供給用溝112a、貫通孔間を結ぶ溝112を、燃料を供給する面に形成したものである。

本例の場合、電池となった状態で、全体をつつむ筐体（図示していない）と、板状の部材110の燃料供給用溝112a、貫通孔間を結ぶ溝112の形成面側とが当接する。これにより、当接する板状の部材110と筐体との間で、板状の部材110の貫通孔部111、燃料供給用溝112a、貫通孔間を結ぶ溝112が、それぞれ、燃料供給用流路を構成する。

板状の部材 110 は、金属を基体とし、少なくとも、基体の燃料電池の電解質側となる表面部には、耐酸性、電気導電性の樹脂層からなる保護層を配設している。この保護層は、例えば、図 10、図 11 に斜線で示される部位に配設することができる。

- 5 板状の部材 110 の材質は、燃料使用に耐えるもので、耐酸性、電気導電性を有し、所定の強度が得られれば、特に限定されない。

板状の部材 110 の金属基体は、機械加工、フォトリソグラフィー技術を用いたエッチング加工により、所定の形状に加工することができる。

- また、金属からなる基体の表面部に耐酸性かつ電気導電性を有する樹脂膜の配
10 設方法としては、樹脂にカーボン粒子、耐食性の金属等の導電材を混合した電着液を用いて、電着により膜を形成し、その後、加熱硬化する方法、あるいは、電解重合により、導電性高分子からなる樹脂に導電性を高めるドーパントを含んだ状態の膜を形成する方法等が挙げられる。

- 電着は、電着性を有する各種アニオン性、またはカチオン性合成高分子樹脂を、
15 樹脂膜を電着形成するための電着液として用い、且つ、電着液中に、導電材を分散させた状態で、電着を行なう。

尚、電着により形成された樹脂膜の樹脂自体には導電性がないが、樹脂に導電材が混ざった状態で膜形成されるため、樹脂膜としては導電性を示す。

- 用いられるアニオン性高分子樹脂としては、アクリル樹脂、ポリエステル樹脂、
20 マレイン化油樹脂、ポリブタジエン樹脂、エポキシ樹脂、ポリアミド樹脂、ポリイミド樹脂等を単独で、あるいは、これらの樹脂の任意の組合せによる混合物として使用できる。

さらに、上記のアニオン性合成樹脂とメラミン樹脂、フェノール樹脂、ウレタン樹脂等の架橋性樹脂とを併用しても良い。

- 25 また、用いられるカチオン性合成高分子樹脂としては、アクリル樹脂、エポキシ樹脂、ウレタン樹脂、ポリブタジエン樹脂、ポリアミド樹脂、ポリイミド樹脂等を単独で、あるいは、これらの任意の組合せによる混合物として使用できる。
さらに、上記のカチオン性合成高分子樹脂とポリエステル樹脂、ウレタン樹脂等の架橋性樹脂を併用しても良い。

また、上記の高分子樹脂に粘着性を付与するために、ロジン系、テルペン系、石油樹脂等の粘着性付与樹脂を必要に応じて添加することも可能である。

上記高分子樹脂は、アルカリ性物質または酸性物質により中和して水に可溶化された状態、または水分散状態で電着法に供される。すなわち、アニオン性合成

5 高分子樹脂は、トリメチルアミン、ジエチルアミン、ジメチルエタノールアミン、ジイソプロパノールアミン等のアミン類、アンモニア、苛性カリ等の無機アルカリで中和する。カチオン性合成高分子樹脂は、酢酸、ぎ酸、プロピオン酸、乳酸等の酸で中和する。そして、中和されて水に可溶化とされた高分子樹脂は、水分散型または溶解型として水に希釈された状態で使用される。

10 電着を用いた樹脂膜形成の場合、樹脂に混ぜる導電材としてカーボン粒子、耐食性の金属等が挙げられるが、耐酸性かつ電気導電性の樹脂層が得られれば、これらに限らない。

電解重合は、基本的には、芳香族化合物をモノマーとして含む電解液に電極を浸漬して通電して行い、電気化学的に酸化又は還元して重合する方法で、広く知
15 られる方法で、ここではその詳細は省略する。

電解重合により、導電性高分子を直接フィルム状に合成することができるが、本例においては、電解重合された樹脂中に導電性を高めるドーパントを含んだ状態としてある。

20 このように、電解重合された樹脂中に、更に導電性を高めるドーパントを含んだ状態とするには、電解重合の際にドーパントを含ませる電気化学的ドーピング、あるいは、電解重合後、電解重合により形成された導電性樹脂（高分子）をドーパントの液体そのものに浸漬する、あるいはドーパント分子を含む溶液に浸す液相ドーピング等の方法を使用することができる。

25 尚、このドーパントは、重合後に陰極と陽極を短絡したり、逆電圧を印加して脱離又は中和することができ、更に電圧を制御して可逆的にドーブ、脱ドーブしてドーパント濃度を制御することも可能である。

電解重合を用いた樹脂膜形成に使用するドーパントのうち、電子を与えるドナー型のドーパントとしては、アルカリ金属、アルキルアンモニウムイオン等が挙げられ、電子を奪うアクセプタ型のドーパントとしては、ハロゲン類、ルイス

酸、プロトン酸、遷移金属ハライド、有機酸が挙げられる。

次いで、本発明のダイレクトメタノール型の平面型の高分子電解質型燃料電池用のセパレータの実施の形態の第2の例を図12に基づいて説明する。

第2の例も、第1の例と同様、燃料としてメタノール水溶液をダイレクトに用
5 いるダイレクトメタノール型、且つ、平面型の高分子電解質型燃料電池用の燃料
供給側のセパレータである。このセパレータ100Bも、第1の例と同様の板状
の部材110を用いている。セパレータ100Bでは、貫通孔111、燃料供給
用溝112a、貫通孔間を結ぶ溝112とが形成されている板状の部材110と、
板状の部材110の溝112aと溝112が形成された面を覆う蓋部120とが
10 らなる。そして、板状の部材110と蓋部120とが当接し、この板状の部材1
10と蓋部120との間で、貫通孔部111、燃料供給用溝112a、貫通孔間
を結ぶ溝112が、それぞれ、燃料供給用流路を構成している。

本例の場合、蓋部120は、例えば、ベタのステンレス薄板とすることができ
るが、蓋部120の材質としては、燃料使用に耐えるもので、所定の強度がえら
15 れれば特に限定されない。例えば、電氣的接続に利用する場合には、ステンレス、
冷間圧延鋼板、アルミニウム等の金属薄板が用いられる。

次いで、本発明のダイレクトメタノール型の平面型の高分子電解質型燃料電池
用のセパレータの実施の形態の第3の例を図13～図15に基づいて説明する。

第3の例のセパレータ100Cは、第2の例と同様、その面に略直交する貫通
20 孔部111を複数配列して配設した板状の部材110aと、蓋部120aとから
なるものである。このセパレータ100Cでは、板状の部材110aと当接する
方の蓋部120aの面には、燃料供給用溝122a、貫通孔間を結ぶ溝が122
設けられている。そして、板状の部材110aと蓋部120aとが当接すること
により、板状の部材110aと蓋部120aとの間で、板状の部材110aの貫
25 通孔部111と、蓋部120の燃料供給用溝122a、貫通孔間を結ぶ溝122
とが、それぞれ、燃料供給用流路を構成する。

板状の部材110a、蓋部120aは、第2の例と同様のものを使用すること
ができる。

尚、蓋部120aの加工は、基体が金属であれば、通常、機械加工、エッチン

グ加工により行われ、樹脂であれば、射出成形、押し出し成形、トランスファー成形、カレンダー成形、圧縮成形、注型などの一般的成形法や、切削などの機械加工によって行われる。

次に、上述の本発明のセパレータを用いた本発明の高分子電解質型燃料電池の
5 実施の形態の第1の例を図16、図17に基づいて説明する。

本例は、図12に示す第2の例のセパレータ100Bを使用した、ダイレクトメタノール型の平面型の高分子電解質型燃料電池である。

この高分子電解質型燃料電池は、平面状に単位セル130を複数個配列し、これらを電氣的に直列に接続し、単位セルの個数分（図17では4個分）の電圧を
10 取り出す高分子電解質型燃料電池である。そして、各単位セル130のまわりには、これと略同じ厚さの絶縁部134を設け、全体を平面状にしている。すなわち、平板状の絶縁部134のくり抜き部に、単位セル130を嵌め込んだ状態とすることにより、単位セル130と絶縁部134とを平面状に設けているものである。また、所定の隣接する単位セル間に位置して、各単位セルと電氣的に絶縁
15 された絶縁部134に、貫通してその表裏の接続をおこなうための表裏接続部142を設けている。そして、この表裏接続部142を、接続配線141を介して、隣接する一方の単位セルの燃料極側のセパレータ100Bおよび他方の単位セルの空気極側のセパレータ132に接続して、隣接する単位セル間を電氣的に直列に接続しているものである。

20 尚、ここでは、説明を分かり易くする為、図17で単位セルの個数を4個としているが、5個以上でも良い。

絶縁部134は、隣接する単位セル間を、接続部140（接続配線141および表裏接続部142）で接続される以外は、互いに絶縁するものであり、このような絶縁部134は、処理性、耐久性の面で優れたものであれば特に限定はされない。
25

絶縁部134は、絶縁物のみからなるものでも、導電性のものを一部含むような構造でも良い。絶縁部134用の材料としては、通常、基板材料が用いられ、例えば、ガラスエポキシ、ポリイミド等が使用される。

接続部140としては、スルホール接続部、あるいは、充填ビア接続部、パン

ブ接続部のいずれかが、絶縁部 1 3 4 中に設けられるが、これらは、従来の配線基板技術の応用として、形成できる。

- 単位セル 1 3 0 の空気極側のセパレータ 1 3 2 の材質としては、導電性、強度、耐食性の面で使用に耐え、且つ、接続配線 1 4 1 との接続性が良いものが好ましい。これらの材質としては、通常、金属材が用いられ、例えば、ステンレス、冷間圧延鋼板、アルミニウム等が適用される。

以下、本例の高分子電解質型燃料電池の製造方法の 1 例を、図 1 8 に基づいて、その処理の流れを簡単に説明する。この例では、接続部 1 4 0 の表裏接続部 1 4 2 を、充填タイプのスルホール接続部とした場合とする。

- 10 まず、両面に銅箔 1 5 1 を有するガラスエポキシ基板（絶縁部 1 3 4）に単位セルをはめ込む孔部を形成し、その孔部に単位セル 1 3 0 を、同じ向きに嵌め込む。（図 1 8（a））

次いで、ドリルあるいはレーザにより、充填タイプのスルホール接続部を形成するための、貫通孔 1 3 6 を開ける。（図 1 8（b））

- 15 次いで、デスミア処理および触媒付与処理を行った後、貫通孔 1 3 6 の表面部を含む全面に無電解めっきを行ない、更に無電解めっき層上に電解めっきを行なう。これにより、貫通孔 1 3 6 がめっき層 1 5 3 で充填されて表裏接続部 1 4 2 が形成され、表裏が導通される。（図 1 8（c））

- 20 無電解めっきとしては、無電解ニッケルめっき、無電解銅めっきを適宜おこなう。無電解めっきは、触媒にて活性化処理を行った後、所定のめっき液にて行う。また、電解めっきとしては、通常、銅めっきが行われる。

次いで、表裏面全体にレジスト製版を行ない、レジストから露出しためっき層 1 5 3 をエッチングして接続配線 1 4 1 を形成し、レジストの除去、必要に応じ洗浄処理を行ない、本例の高分子電解質型燃料電池を得る。（図 1 8（d））

- 25 エッチング液は、めっき層 1 5 3 を、燃料極側のセパレータ 1 0 0 B や空気極側のセパレータ 1 3 2 とは別に選択的にエッチングできるものを使用する。このようなエッチング液としては、塩化第 2 鉄液等を用い、セパレータの材質と銅配線のエッチングレートを検討し、エッチング条件を決定することができる。

尚、ここでは、貫通孔 1 3 6 を、めっき層 1 5 3 で充填したが、これに限定さ

れるものではない。例えば、貫通孔 136 を大きくしておき、めっき後の状態が、貫通孔 136 の内壁面にめっき層 153 が形成されているものの、まだ表裏で貫通している状態とする、普通のスルホール接続部としても良い。

図 18 に示す接続部 140 の形成方法は 1 例であり、これに限定はされない。

- 5 尚、このように、所定の隣接する単位セル間に、各単位セルと電氣的に絶縁された略単位セルの厚さの絶縁部 134 が設けられていることにより、接続部 140 として、従来広く用いられているスルホール接続の他、充填ビア接続、バンプ接続等を採用することができる。また、接続部 140 の形成は、各単位セルに影響のない電氣的に安定なものとなる。

- 10 次に、本発明の高分子電解質型燃料電池の実施の形態の第 2 の例を図 19 に基づいて説明する。

- 図 19 に示す第 2 の例の高分子電解質型燃料電池も、図 12 に示す第 2 の例のセパレータ 100B を用いたものである。この第 2 の例では、第 1 の例の高分子電解質型燃料電池と同様、平面状に単位セル 160 を複数個配列し、これらを電
- 15 氣的に直列に接続し、単位セルの個数分（例えば、4 個分）の電圧を取り出す高分子電解質型燃料電池である。そして、接続部 170 を設ける単位セル 160 間の一部に、これと略同じ厚さの絶縁部 164 を設け、全体を平面状にしてある。すなわち、表裏接続部 172 を設ける隣接する単位セル間の、高分子電解質膜 163 の一部を、絶縁部 164 に置き代えてある構造となっている。

- 20 この場合、1 つの平板状の高分子電解質膜 163 の両側の、それぞれ、複数個（例えば、4 個）の燃料極側のセパレータ 100B、空気極側のセパレータ 162 は、それぞれ離れた状態で配置されている。さらに、各単位セル 160 の燃料極側のセパレータ 100B、空気極側セパレータ 162 は同じ大きさで、同じ位置で相対しており、各単位セルは分離されている。

- 25 この例の場合も、所定の隣接する単位セル間に位置し、各単位セル 160 と電氣的に絶縁された絶縁部 164 に、第 1 の例の高分子電解質型燃料電池の場合と同様、貫通してその表裏の接続をおこなうための表裏接続部 172 を設けている。そして、この表裏接続部 172 を、接続配線 171 を介して、隣接する一方の単位セルの燃料極側のセパレータ 100B および他方の単位セルの空気極側のセパ

レータ 162 に接続して、隣接する単位セル間を電氣的に接続しているものである。

尚、ここでも、説明を分かり易くする為、単位セルの個数を 4 個としているが、5 個以上でも良い。

- 5 この例の場合も、各部（材質や構造等）は、第 1 の例の高分子電解質型燃料電池の場合と同じものが適用できる。

次いで、本発明の高分子電解質型燃料電池の実施の形態の第 3 の例を図 20 に基づいて説明する。

- 10 図 20 に示す第 3 の例の高分子電解質型燃料電池も、図 12 に示す第 2 の例のセパレータ 100B を用いたものである。この高分子電解質型燃料電池は、1 つの単位セル 180 のサイズより大サイズの 1 つの板状の高分子電解質膜 183A の一部を、各単位セル 180 の電解質膜 183 として、各単位セル 180 を同じ向きにして平面状に複数個配設したものである。そして、所定の隣接する単位セル 180 間を電氣的に直列に接続して、複数の単位セルすべてを直列に接続し、
- 15 単位セルの個数分（例えば、4 個分）の電圧を取り出す高分子電解質型燃料電池である。この高分子電解質型燃料電池では、所定の隣接する単位セル間の電氣的な接続をおこなうために、所定の隣接する単位セル間に位置する高分子電解質膜 183A に、表裏接続部 192 を設けている。

- 20 この例においても、表裏接続部 192 を、接続配線 191 を介して、隣接する一方の単位セル 180 の燃料極側のセパレータ 100B および他方の単位セル 180 の空気極側のセパレータ 182 に接続して、隣接する単位セル間を電氣的に接続している。

尚、ここでも、説明を分かり易くする為、単位セルの個数を 4 個としているが、5 個以上でも良い。

- 25 この例の場合も、接続部 190 として、スルホール接続部、あるいは、充填ピタ接続部、バンプ接続部等を、接続する所定の隣接する単位セル間の高分子電解質膜 183A に設ける。

上記の例では、図 12 に示した第 2 の例のセパレータ 100B を用いたものを挙げたが、図 10 に示す第 1 の例のセパレータ 100A、図 13 に示す第 3 の例

のセパレータ１００Ｃも、同様に、適宜、使用して、ダイレクトメタノール型で平面型の高分子電解質型燃料電池を得ることができる。

産業上の利用可能性

- ５ 以上のように、本発明に係る高分子電解質型燃料電池は平面型で、薄い形態の燃料電池に適しており、また、本発明のセパレータは、ダイレクトメタノール型、且つ、平面型の高分子電解質型燃料電池に使用して、燃料供給を均一なものとするに適し、このセパレータを使用した高分子電解質型燃料電池も、平面型で、薄い形態の燃料電池に適している。

請求の範囲

1. 各単位セルを同じ向きにして平面状に複数個配設し、所定の隣接する単位セル間を電氣的に直列に接続して、前記複数の単位セルを
5 直列に接続した高分子電解質型燃料電池において、

前記所定の隣接する単位セル間の電氣的な接続をおこなうために、前記所定の隣接する単位セル間に位置して各単位セルと電氣的に絶縁された略単位セルの厚さの絶縁部に、スルホール接続部、充填ビア接続部、パンプ接続部の少なくとも1つを設けていることを特徴とする高分子電
10 解質型燃料電池。

2. 1つの板状の高分子電解質膜の一部を各単位セルを構成する電解質膜として複数個の単位セルを同じ向きにして平面状に配設し、所定の隣接する単位セル間を電氣的に直列に接続して、前記複数の単位セルを直列に接続した高分子電解質型燃料電池において、
15

前記所定の隣接する単位セル間の電氣的な接続をおこなうために、前記所定の隣接する単位セル間の高分子電解質膜に、スルホール接続部、充填ビア接続部、パンプ接続部の少なくとも1つを設けていることを特徴とする高分子電解質型燃料電池。

20

3. 燃料としてメタノール水溶液をダイレクトに用いるダイレクトメタノール型、且つ、平面型の高分子電解質型燃料電池用の燃料供給側のセパレータにおいて、

燃料を燃料電池の電解質側に供給するための貫通孔を、その面に略直交するよう
25 うにして複数配列して設けた板状の部材を有し、該板状の部材の燃料を供給する面には燃料供給用溝と、貫通孔間を結ぶ溝とが形成されていることを特徴とするダイレクトメタノール型の平面型の高分子電解質型燃料電池用のセパレータ。

4. 請求項3に記載の高分子電解質型燃料電池用のセパレータにおいて、

各貫通孔には、燃料供給用溝または貫通孔間を結ぶ溝が複数つながっている。

5. 請求項 3 に記載の高分子電解質型燃料電池用のセパレータにおいて、前記板状の部材は、金属を基体とし、少なくとも燃料電池の電解質側となる前記
5 基体の表面部には、耐酸性、電気導電性の樹脂層等からなる保護層が配設されている。

6. 請求項 5 に記載の高分子電解質型燃料電池用のセパレータにおいて、前記保護層は、樹脂にカーボン粒子、耐食性の金属等の導電材を混合した電着液
10 を用いて、電着により膜を成膜し、その後、加熱硬化して形成されたもの、あるいは、電解重合により、導電性高分子からなる樹脂に導電性を高めるドーパントを含んだ状態の膜を成膜して形成されたものである。

7. 燃料としてメタノール水溶液をダイレクトに用いるダイレクトメタノール型、且つ、平面型の高分子電解質型燃料電池用の燃料供給側のセパレータにおいて、
15

燃料を燃料電池の電解質側に供給するための貫通孔を、その面に略直交するようにして複数配列して設けた板状の部材と、該板状の部材の一方の面を覆う蓋部とを有し、前記板状の部材の前記蓋部と当接する面には燃料供給用溝と、貫通孔
20 間を結ぶ溝とが形成されており、当接された前記板状の部材と蓋部との間で、前記貫通孔、前記燃料供給用溝、貫通孔間を結ぶ前記溝が、それぞれ、燃料供給用流路を構成していることを特徴とするダイレクトメタノール型の平面型の高分子電解質型燃料電池用のセパレータ。

8. 請求項 7 に記載の高分子電解質型燃料電池用のセパレータにおいて、各貫通孔には、燃料供給用溝または貫通孔間を結ぶ溝が複数つながっている。
25

9. 請求項 7 に記載の高分子電解質型燃料電池用のセパレータにおいて、前記板状の部材は、金属を基体とし、少なくとも燃料電池の電解質側となる前記

基体の表面部には、耐酸性、電気導電性の樹脂層等からなる保護層が配設されている。

- 10 10. 請求項7に記載の高分子電解質型燃料電池用のセパレータにおいて、
- 5 前記保護層は、樹脂にカーボン粒子、耐食性の金属等の導電材を混合した電着液を用いて、電着により膜を成膜し、その後、加熱硬化して形成されたもの、あるいは、電解重合により、導電性高分子からなる樹脂に導電性を高めるドーパントを含んだ状態の膜を成膜して形成されたものである。
- 10 11. 燃料としてメタノール水溶液をダイレクトに用いるダイレクトメタノール型、且つ、平面型の高分子電解質型燃料電池用の燃料供給側のセパレータにおいて、
- 15 燃料を燃料電池の電解質側に供給するための貫通孔を、その面に略直交するようにして複数配列して設けた板状の部材と、該板状の部材の一方の面を覆う蓋部とからなり、該蓋部の前記板状の部材と当接する面には、燃料供給用溝と、貫通孔間を結ぶ溝とが設けられており、当接された前記板状の部材と前記蓋部との間で、前記板状の部材の貫通孔部、前記蓋部の燃料供給用溝、貫通孔間を結ぶ溝が、それぞれ、燃料供給用流路を構成していることを特徴とするダイレクトメタノール型の平面型の高分子電解質型燃料電池用のセパレータ。
- 20 12. 請求項11に記載の高分子電解質型燃料電池用のセパレータにおいて、各貫通孔には、燃料供給用溝または貫通孔間を結ぶ溝が複数つながっている。
- 25 13. 請求項11に記載の高分子電解質型燃料電池用のセパレータにおいて、前記板状の部材は、金属を基体とし、少なくとも燃料電池の電解質側となる前記基体の表面部には、耐酸性、電気導電性の樹脂層等からなる保護層が配設されている。
14. 請求項11に記載の高分子電解質型燃料電池用のセパレータにおい

て、前記保護層は、樹脂にカーボン粒子、耐食性の金属等の導電材を混合した電着液を用いて、電着により膜を成膜し、その後、加熱硬化して形成されたもの、あるいは、電解重合により、導電性高分子からなる樹脂に導電性を高めるドーパントを含んだ状態の膜を成膜して形成されたものである。

5

15. 燃料としてメタノール水溶液をダイレクトに用いるダイレクトメタノール型、且つ、平面型の高分子電解質型燃料電池において、

燃料を燃料電池の電解質側に供給するための貫通孔を、その面に略直交するようにして複数配列して設けた板状の部材を有し、該板状の部材の燃料を供給する
10 面には燃料供給用溝と、貫通孔間を結ぶ溝とが形成されている高分子電解質型燃料電池用のセパレータを用いて、該セパレータの貫通孔を介して、燃料を供給するものであることを特徴とする高分子電解質型燃料電池。

16. 燃料としてメタノール水溶液をダイレクトに用いるダイレクトメタノール型、且つ、平面型の高分子電解質型燃料電池において、
15

燃料を燃料電池の電解質側に供給するための貫通孔を、その面に略直交するようにして複数配列して設けた板状の部材と、該板状の部材の一方の面を覆う蓋部とを有し、前記板状の部材の前記蓋部と当接する面には燃料供給用溝と、貫通孔間を結ぶ溝とが形成されており、当接された前記板状の部材と蓋部との間で、前
20 記貫通孔、前記燃料供給用溝、貫通孔間を結ぶ前記溝が、それぞれ、燃料供給用流路を構成している高分子電解質型燃料電池用のセパレータを用いて、該セパレータの貫通孔を介して、燃料を供給するものであることを特徴とする高分子電解質型燃料電池。

25 17. 燃料としてメタノール水溶液をダイレクトに用いるダイレクトメタノール型、且つ、平面型の高分子電解質型燃料電池において、

燃料を燃料電池の電解質側に供給するための貫通孔を、その面に略直交するようにして複数配列して設けた板状の部材と、該板状の部材の一方の面を覆う蓋部とからなり、該蓋部の前記板状の部材と当接する面には、燃料供給用溝と、貫通

孔間を結ぶ溝とが設けられており、当接された前記板状の部材と前記蓋部との間で、前記板状の部材の貫通孔部、前記蓋部の燃料供給用溝、貫通孔間を結ぶ溝が、それぞれ、燃料供給用流路を構成している高分子電解質型燃料電池用のセパレータを用いて、該セパレータの貫通孔を介して、燃料を供給するものであることを

5 特徴とする高分子電解質型燃料電池。

1/17

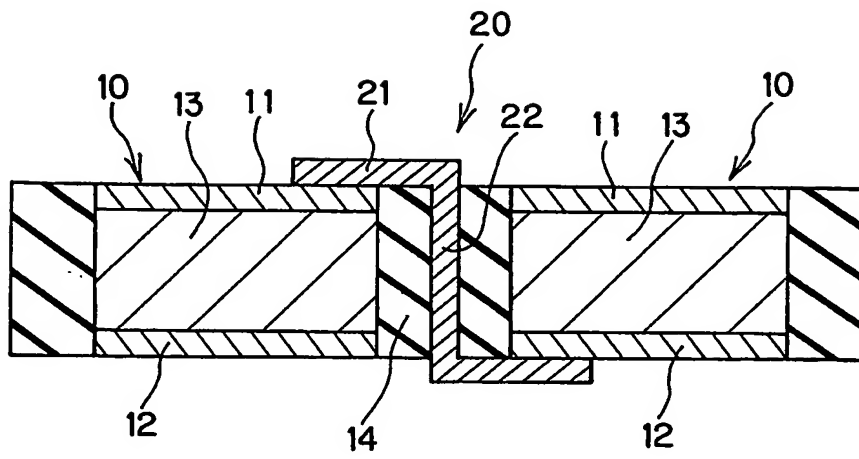


図1

2/17

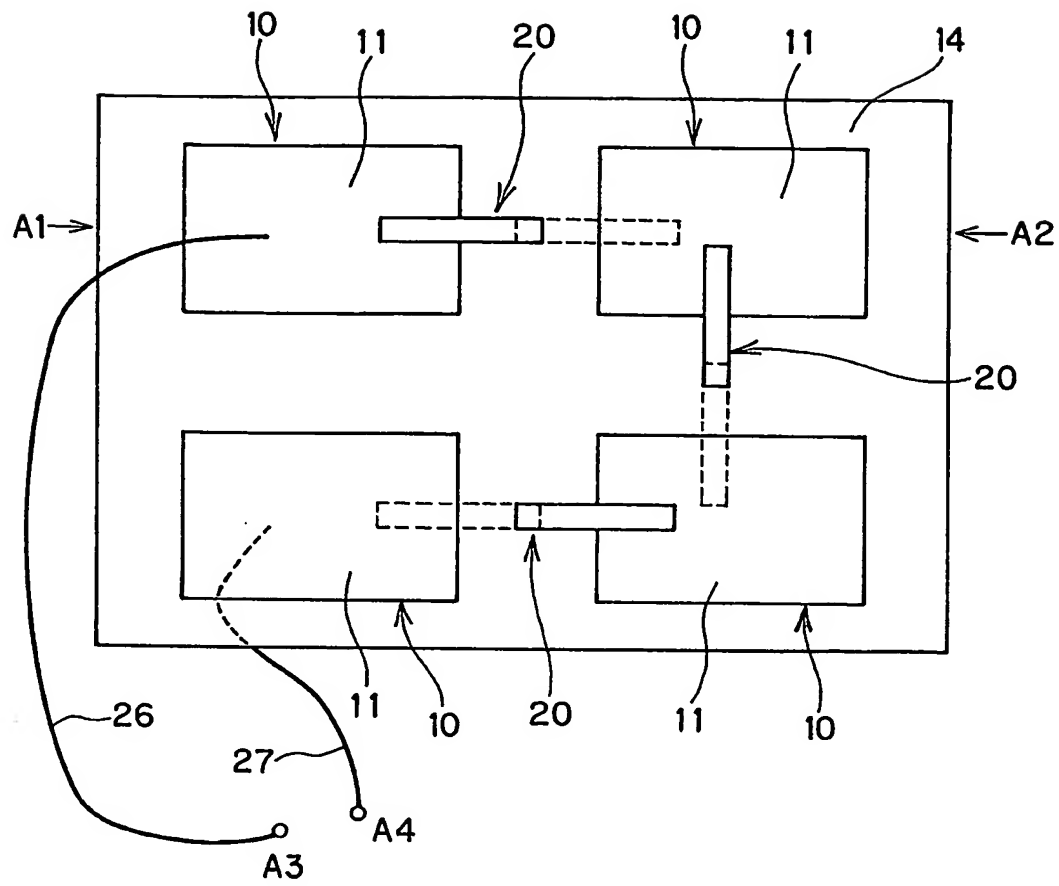


図 2

3/17

図3(a)

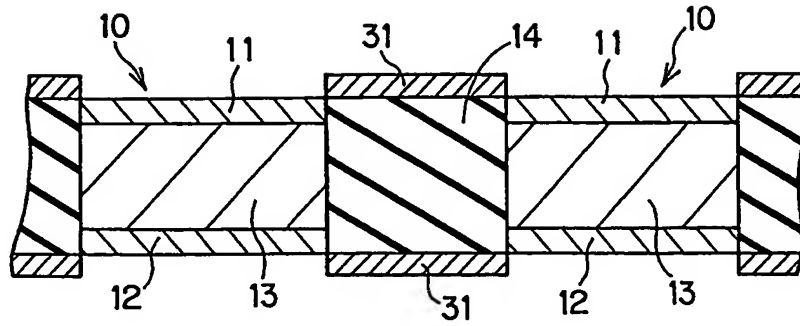


図3(b)

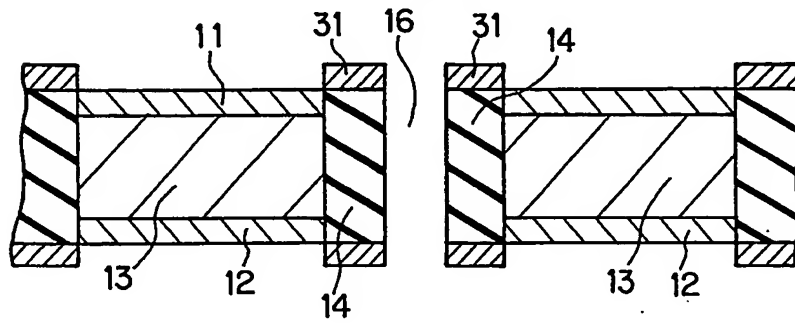


図3(c)

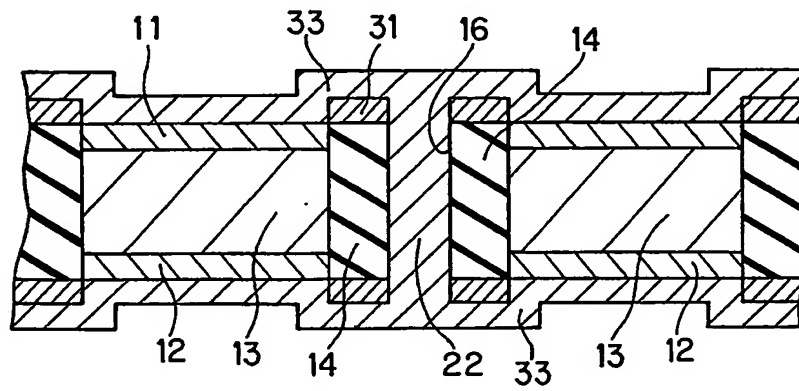
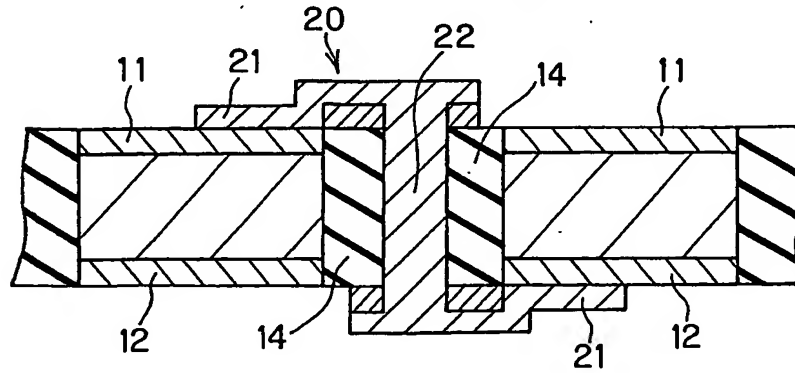


図3(d)



4/17

図4(a)

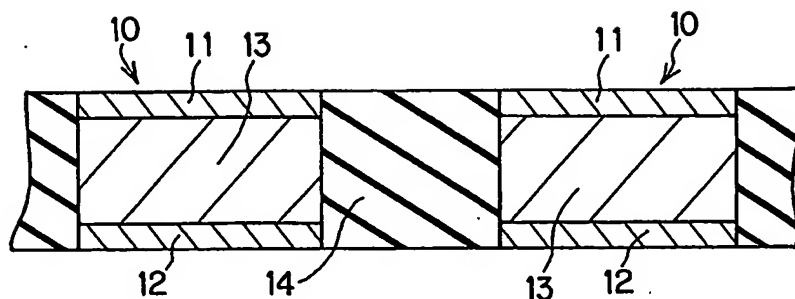


図4(b)

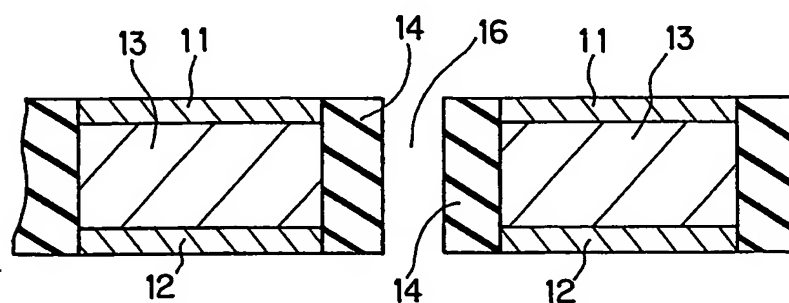


図4(c)

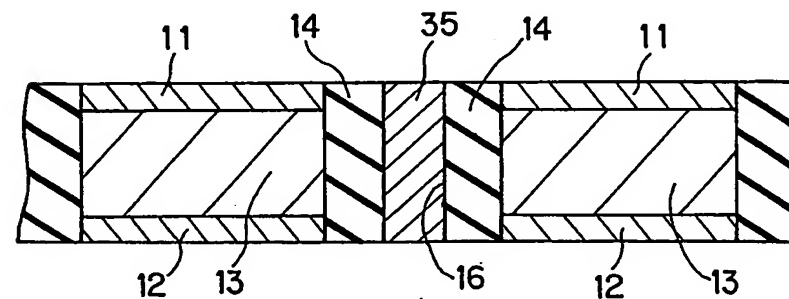
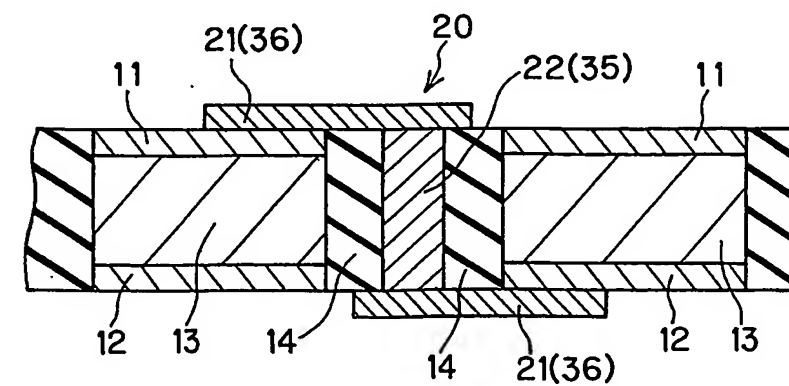


図4(d)



5/17

図5(a)

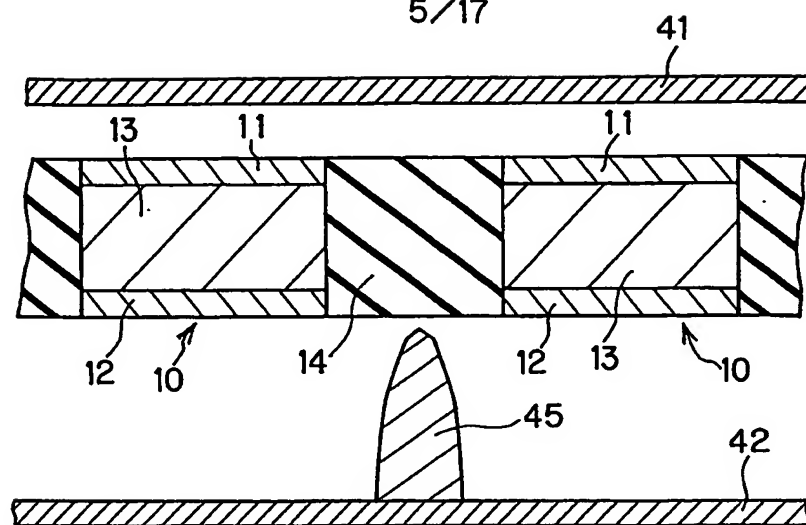


図5(b)

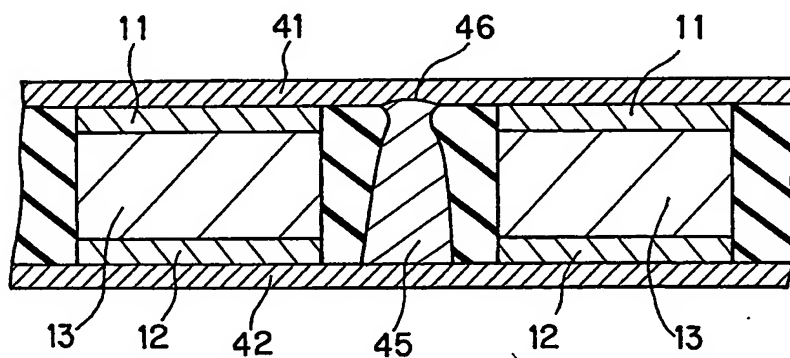
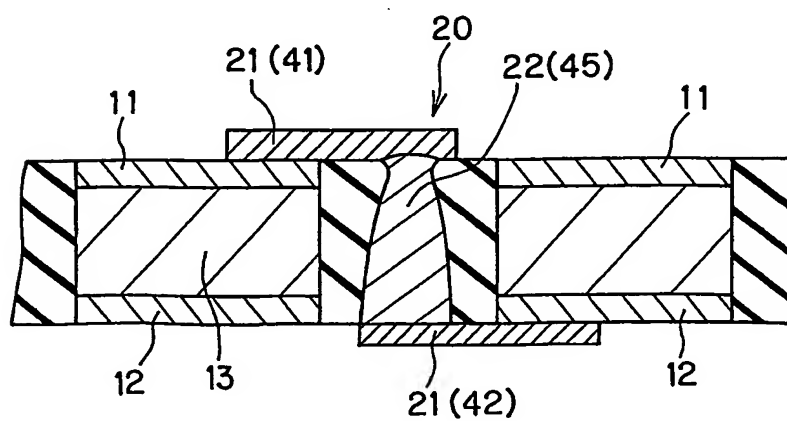


図5(c)



6/17

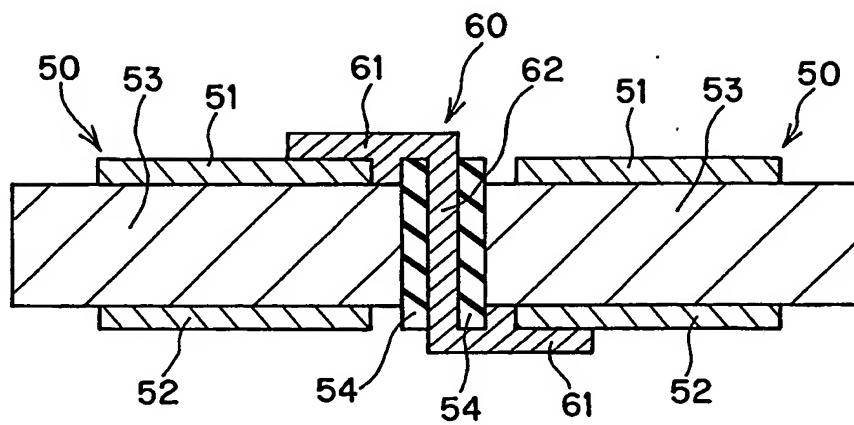


図 6

7/17

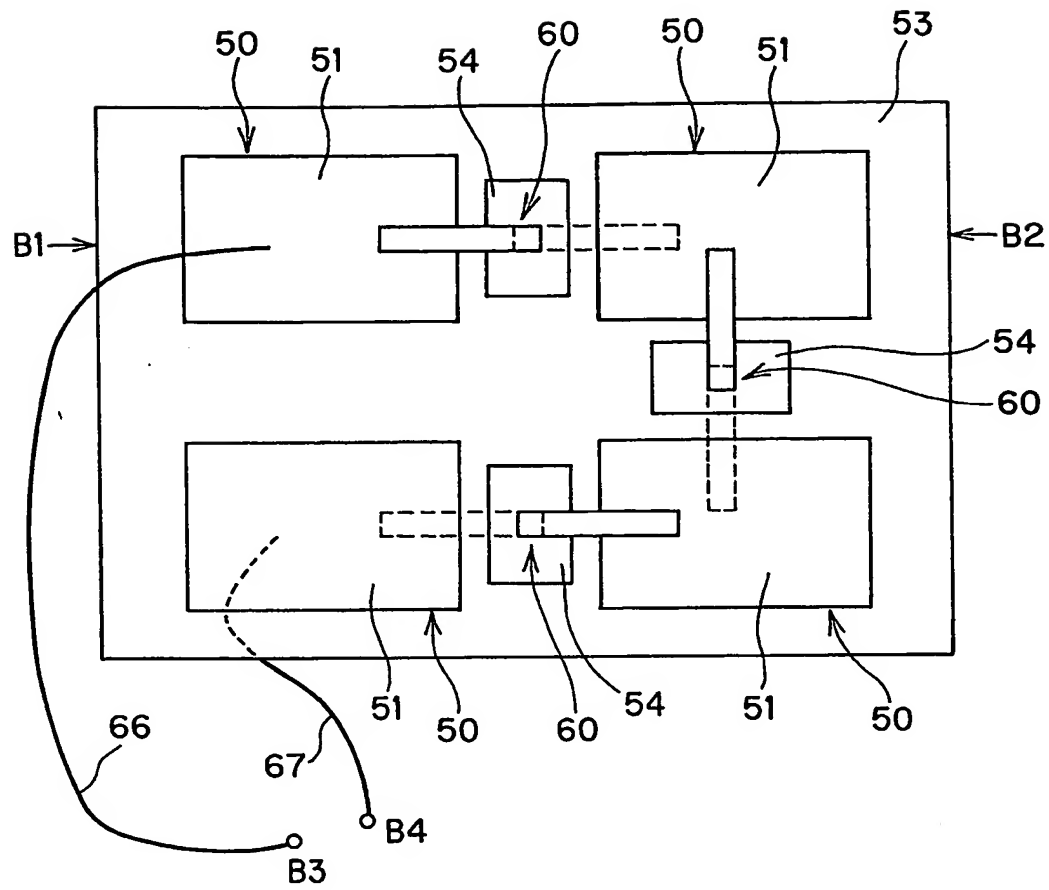


図 7

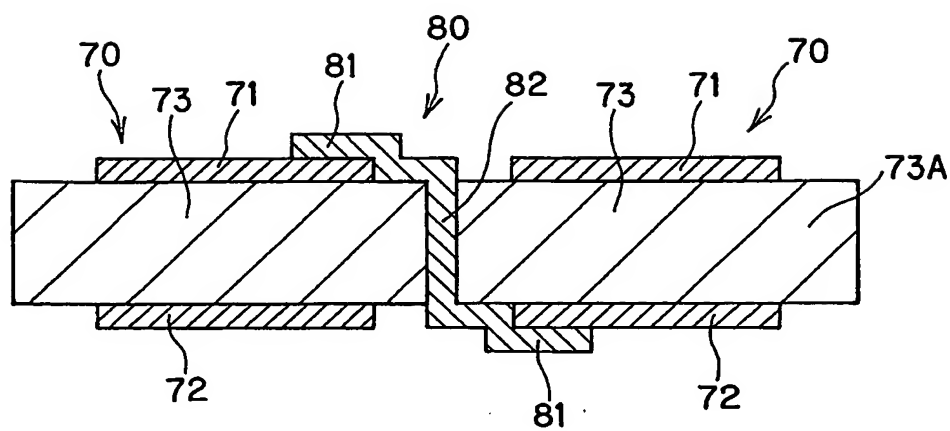


図 8

9/17

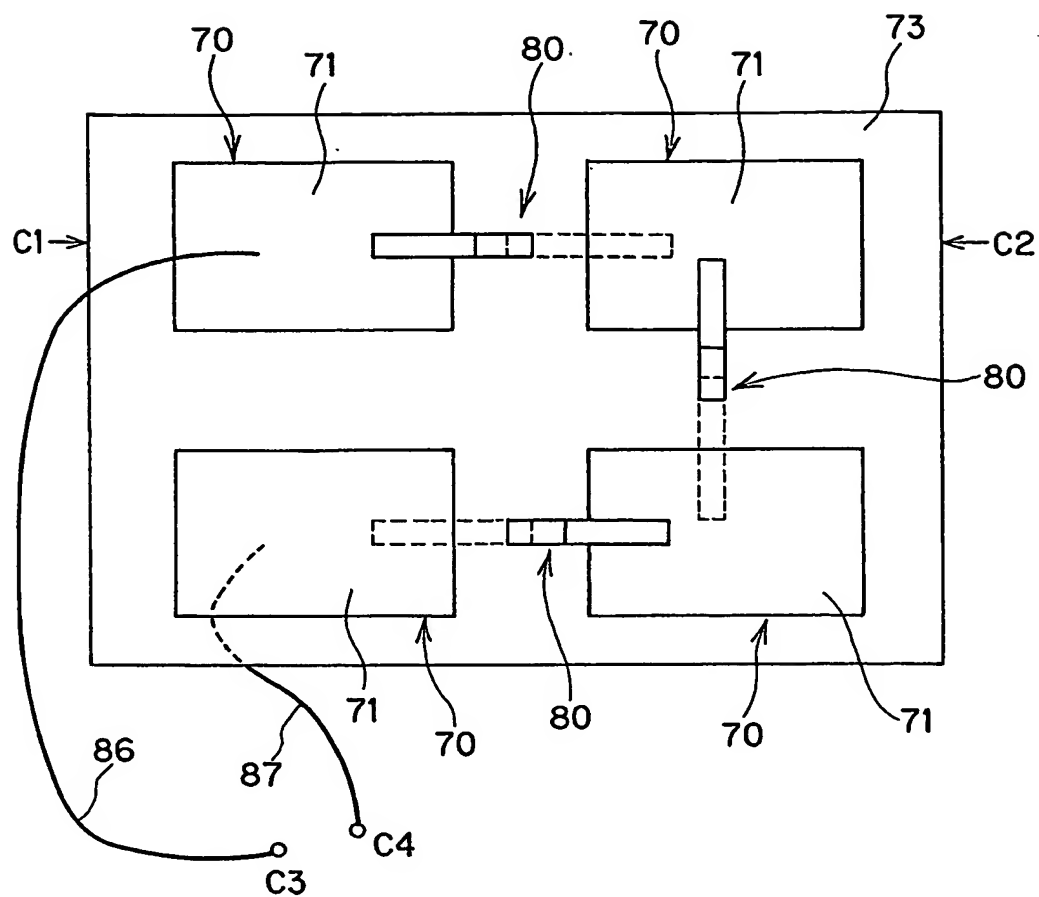


図 9

10/17

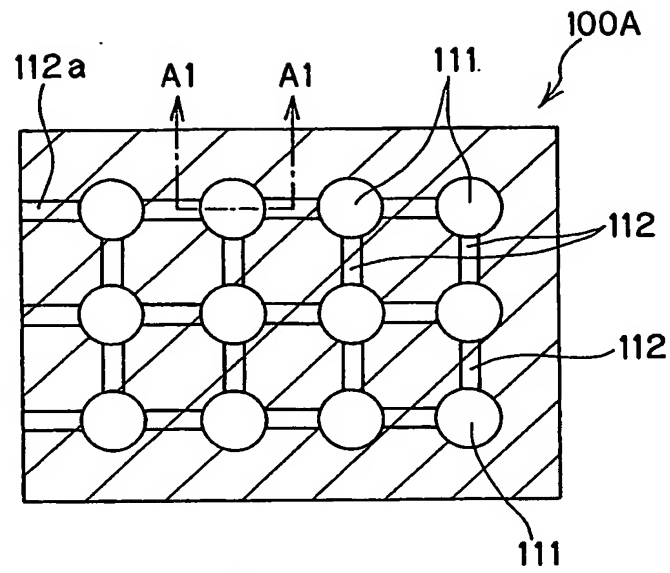


図10

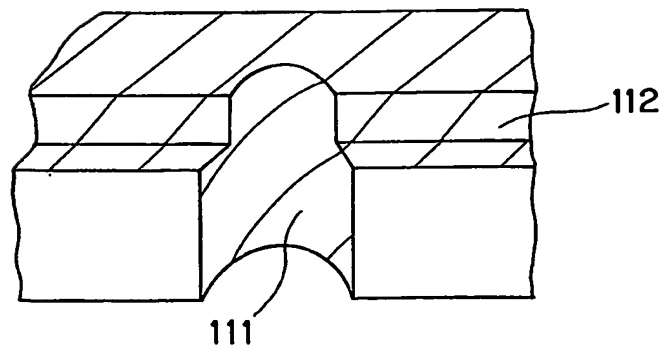


図11

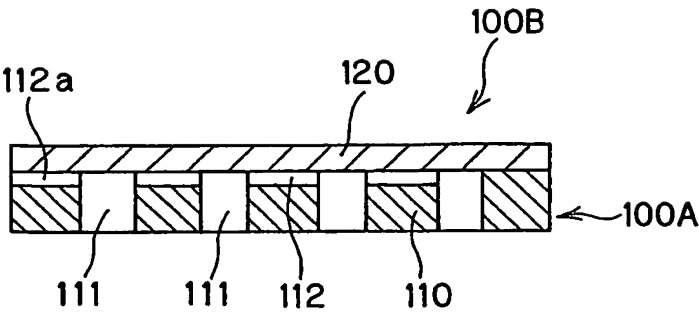


図12

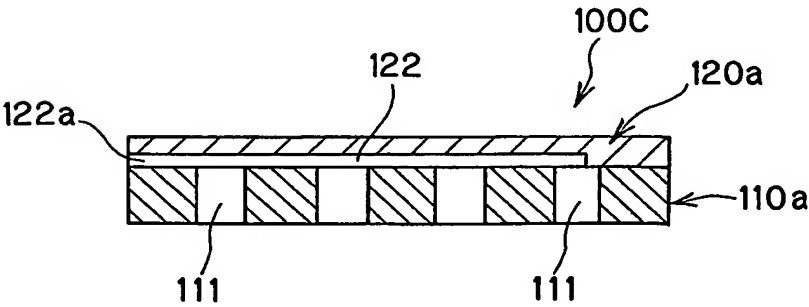


図13

12/17

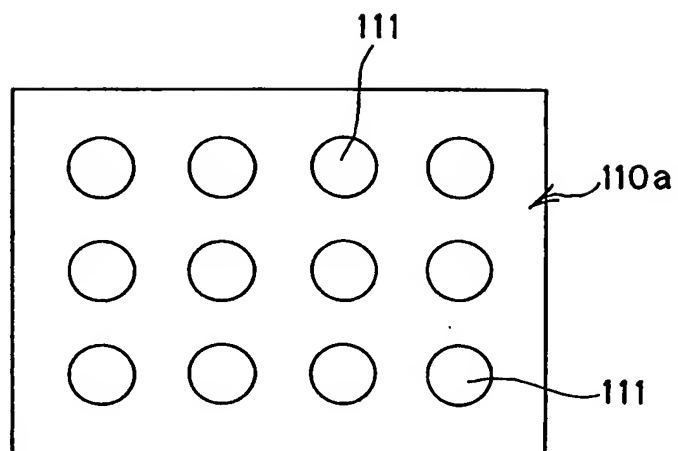


図14

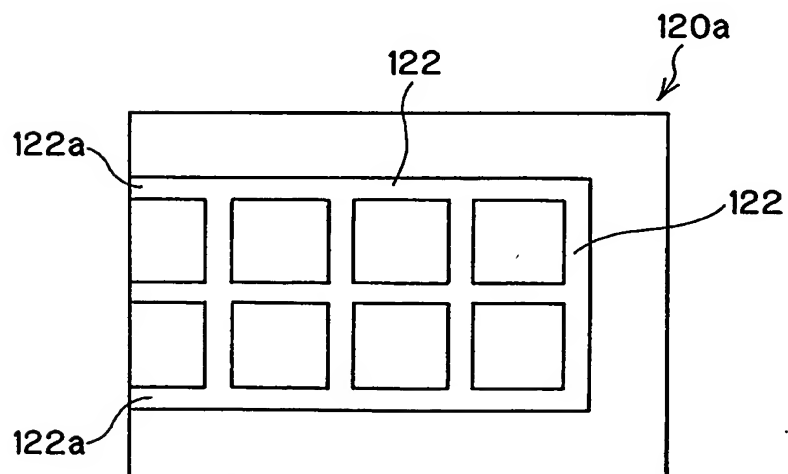


図15

13/17

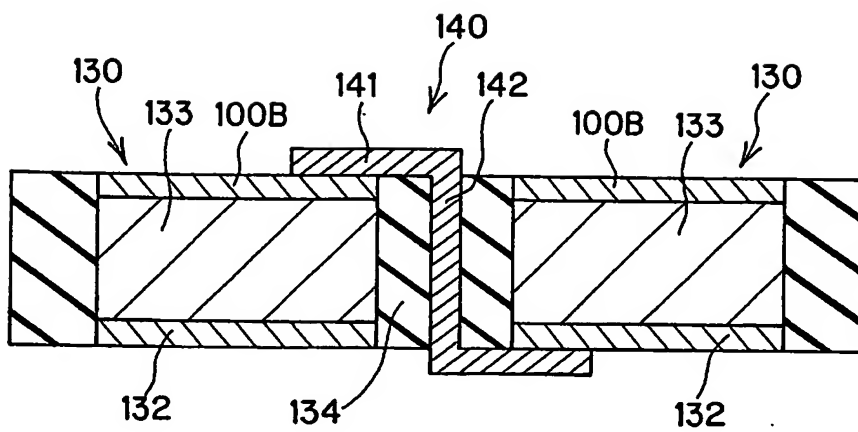


図16

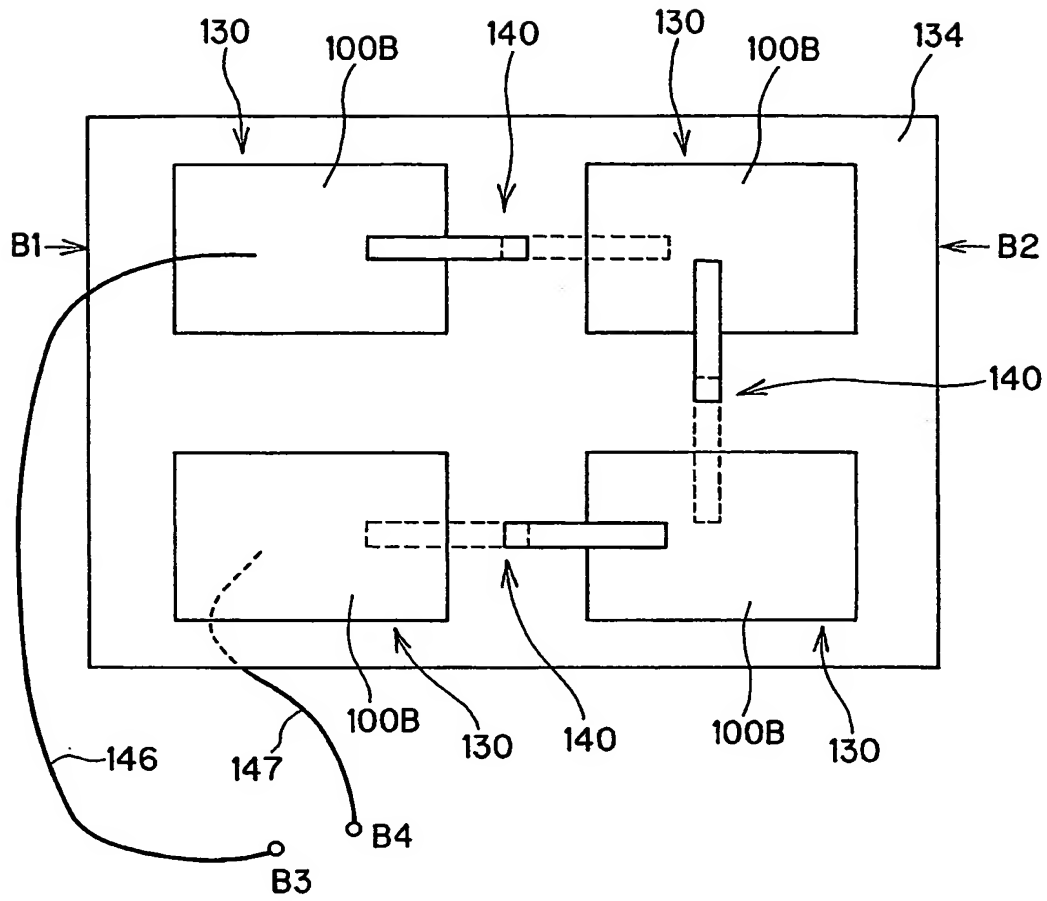
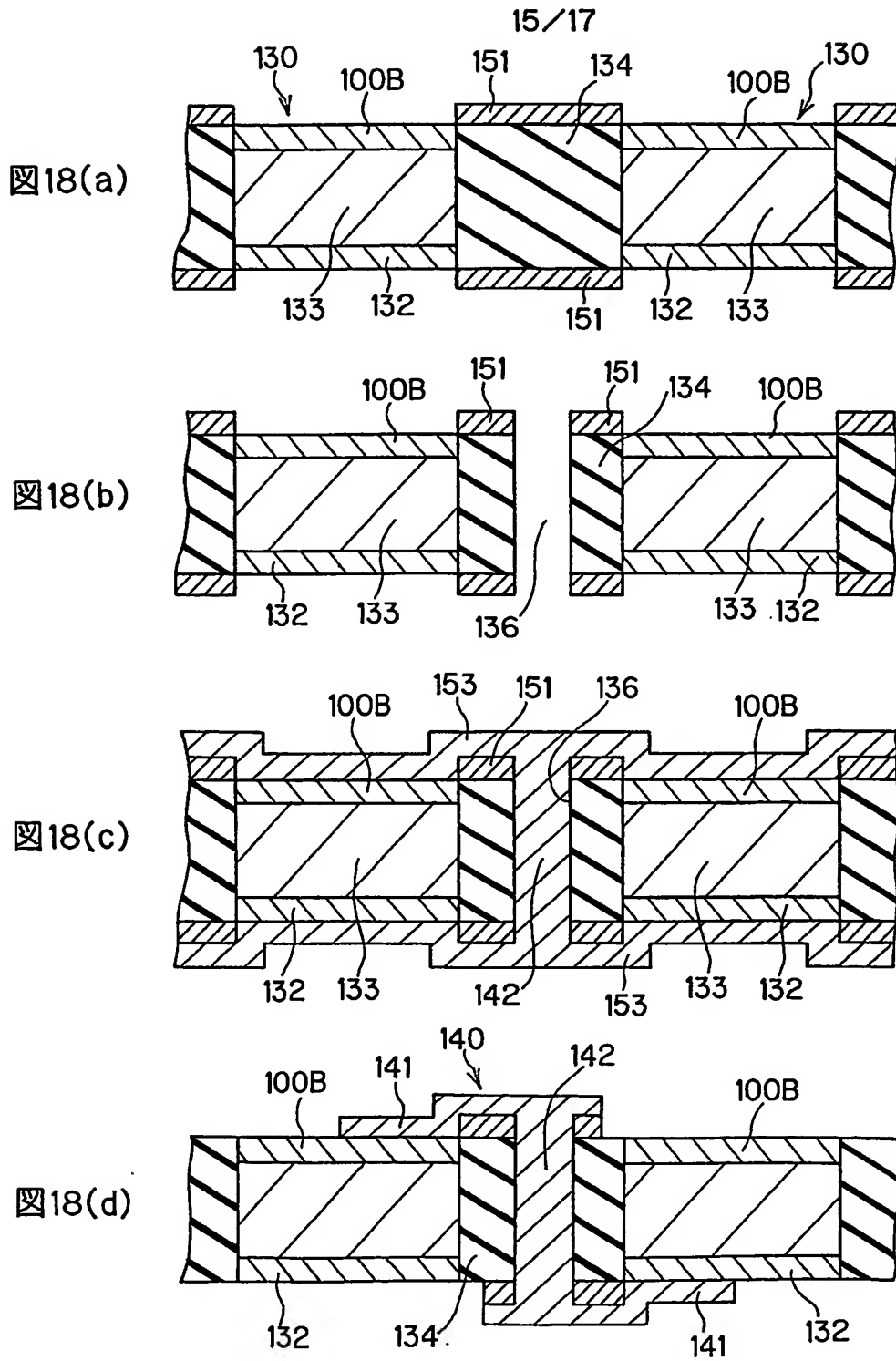


図17



16/17

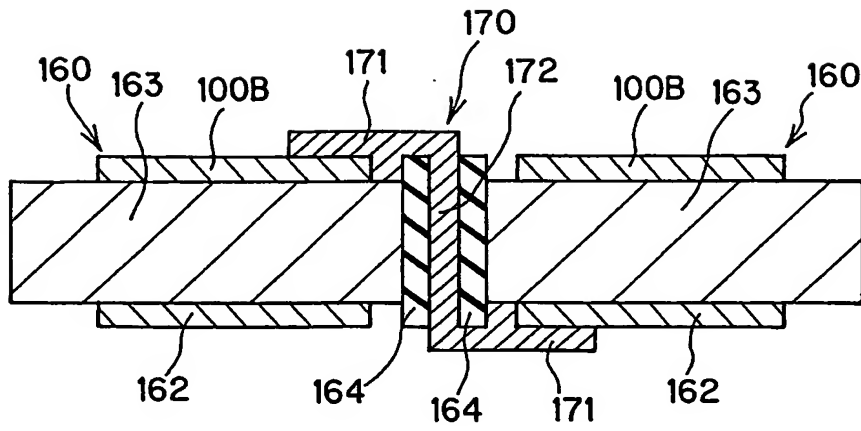


図19

17/17

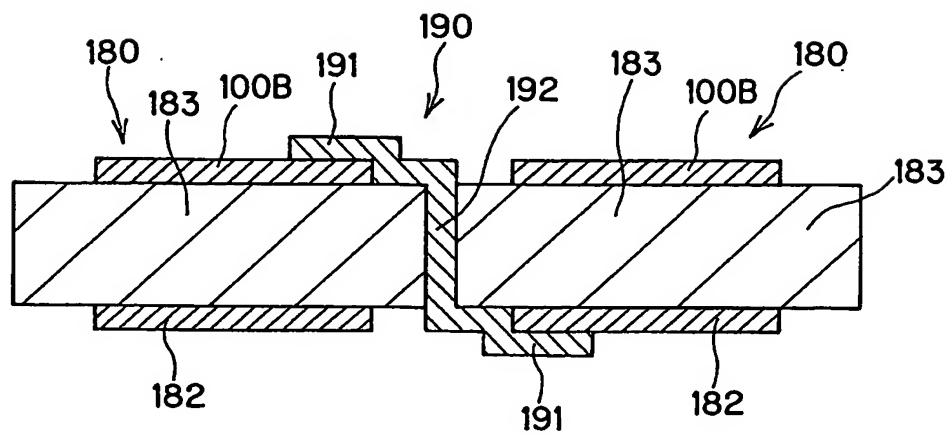


図 20

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP02/13588

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl⁷ H01M8/02, H01M8/10

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
Int.Cl⁷ H01M8/02, H01M8/10

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched
Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2003
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2003 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2003

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 00/69011 A1 (SFC SMART FUEL CELL GMBH),	2
Y	16 November, 2000 (16.11.00), Fig. 5 & JP 2002-544650 A Par. No. [0144]	1
Y	JP 5-41221 A (Mitsubishi Heavy Industries, Ltd.), 19 February, 1993 (19.02.93), Fig. 1 (Family: none)	1
X	WO 98/50973 A1 (BALLARD POWER SYSTEMS INC.), 12 November, 1998 (12.11.98), Figs. 3, 4 & JP 2001-522522 A	3-17
A	JP 2000-353533 A (Toshiba Corp.), 19 December, 2000 (19.12.00), Fig. 4 (Family: none)	3-17

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier document but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
09 April, 2003 (09.04.03)

Date of mailing of the international search report
22 April, 2003 (22.04.03)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP02/13588

Box I Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:

2. ☐ Claims Nos.:
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:

3. ☐ Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box II Observations where unity of invention is lacking (Continuation of Item 3 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

Whereas for a group of inventions to fulfill the requirement of unity of invention, there must exist special technical features for linking the group of inventions so as to form a single general inventive concept, there exists among a group of inventions in claims 1-17 no special technical features for linking the group of inventions so as to form a single general inventive concept. Accordingly, it is clear that the group of inventions in claims 1-17 do not fulfill the requirement of unity of invention.

And, according to specific embodiments of inventions described in independent claims, it is clear in the claims of this international application that two inventions are described classified as claims 1-2, 3-7.

1. ☒ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☐ As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:

4. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.
☒ No protest accompanied the payment of additional search fees.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ H01M8/02, H01M8/10

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ H01M8/02, H01M8/10

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年

日本国公開実用新案公報 1971-2003年

日本国登録実用新案公報 1994-2003年

日本国実用新案登録公報 1996-2003年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	WO 00/69011 A1 (SFC SMART FUEL CELL GMBH) 2000.11.16,	2
Y	Fig.5 & JP 2002-544650 A 【0144】	1
Y	JP 5-41221 A (三菱重工業株式会社) 1993.02.19, 図1 (ファミリーなし)	1
X	WO 98/50973 A1 (BALLARD POWER SYSTEMS INC.) 1998.11.12,	3-17
	Fig.3, Fig4 & JP 2001-522522 A	
A	JP 2000-353533 A (株式会社東芝) 2000.12.19, 図4 (ファミリーなし)	3-17

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

09.04.03

国際調査報告の発送日

22.04.03

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

高木 康晴



4X

9275

電話番号 03-3581-1101 内線 3477

第I欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見 (第1ページの2の続き)

法第8条第3項(PCT17条(2)(a))の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. ☐ 請求の範囲 _____ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。つまり、
2. ☐ 請求の範囲 _____ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. ☐ 請求の範囲 _____ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

第II欄 発明の単一性が欠如しているときの意見 (第1ページの3の続き)

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるとこの国際調査機関は認めた。

請求の範囲に記載されている一群の発明が単一性の要件を満たすには、その一群の発明を単一の一般的発明概念を形成するように連関させるための、特別な技術的特徴の存在が必要であるところ、請求の範囲1～17に記載されている一群の発明には、発明を単一の一般的発明概念を形成するように連関させるための、特別な技術的特徴が存在しない。

したがって、請求の範囲1～17に記載されている一群の発明が発明の単一性の要件を満たしていない。

そして、独立請求の範囲に記載されている発明の特定の態様からすると、この国際出願の請求の範囲には、1-2、3-17とに区分される2個の発明が記載されていると認める。

1. ☒ 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求の範囲について作成した。
2. ☐ 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったので、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。
4. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったので、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求の範囲について作成した。

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあった。
- ☒ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがなかった。

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.